

## Claims

1. A resin for light-emitting diode reflector plates which comprises polyamide (A) having in its molecules a diamine-derived component unit (a-1) derived from 50 to 100 mol% of 1,9-diaminononan and 0 to 50 mol% of a linear aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and/or aliphatic diamine having side chains having 6 to 12 carbon atoms and a dicarboxylic acid-derived component unit (a-2) derived from 60 to 100 mol% of terephthalic acid and 0 to 40 mol% of aromatic dicarboxylic acid other than terephthalic acid and/or an aliphatic dicarboxylic acid having 4 to 20 carbon atoms.
2. A resin composition for light-emitting diode reflector plates which comprises as component (A) 100 parts by weight of a polyamide having its molecules a diamine-derived component unit (a-1) derived from 50 to 100 mol% of 1,9-diaminononan and 0 to 50 mol% of a linear aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and/or a side-chain-having aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and a dicarboxylic acid-derived component unit (a-2) derived from 60 to 100 mol% of terephthalic acid and 0 to 40 mol% of aromatic dicarboxylic acid other than terephthalic acid and/or an aliphatic dicarboxylic acid having 4 to 20 carbon atoms and as component (B) 1 to 200 parts by weight of an inorganic filler.
3. A resin composition for light-emitting diode reflector plates as claimed in Claim 2, wherein the inorganic filler of component (B) comprises at least one inorganic filler selected from a group consisting of glass fiber, talc, wollastonite, potassium titanate, zinc oxide, titanium dioxide, calcium carbonate, barium sulfate and roasted porcelain clay.
4. A light-emitting diode reflector plate which comprises a resin as claimed in Claim 1.
5. A light-emitting diode reflector plate which comprises a resin composition as claimed in Claim 2 or 3.
6. A resin composition for molded articles for bonding epoxy resin which comprises polyamide having its molecules a diamine-derived component unit (a-1) derived from 50 to 100 mol% of 1,9-diaminononan and 0 to 50 mol% of a linear aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and/or a side-chain-having aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and a dicarboxylic acid-derived component unit (a-2) derived from 60 to 100 mol% of terephthalic acid and 0 to 40 mol% of aromatic dicarboxylic acid other than terephthalic acid and/or an aliphatic dicarboxylic acid having 4 to 20 carbon atoms.
7. A resin composition for molded articles for bonding epoxy resin which comprises as component (A) 100 parts by weight of a polyamide having its molecules a diamine-derived component unit (a-1) derived from 50 to 100 mol% of 1,9-diaminononan and 0 to 50 mol% of a linear aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and/or a side-chain having aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and a dicarboxylic acid-derived component unit (a-2) derived from 60 to 100 mol% of terephthalic acid and 0 to 40 mol% of aromatic dicarboxylic acid other than

terephthalic acid and/or an aliphatic dicarboxylic acid having 4 to 20 carbon atoms and as component (B) 1 to 200 parts by weight of an inorganic filler.

8. A resin composition for light-emitting diode reflector plates which comprises 100 parts by weight of polyamide (A) having its molecules a diamine-derived component unit (a-1) derived from 50 to 100 mol% of 1,9-diaminononan and 0 to 50 mol% of a linear aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and/or a side-chain-having aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and a dicarboxylic acid-derived component unit (a-2) derived from 60 to 100 mol% of terephthalic acid and 0 to 40 mol% of aromatic dicarboxylic acid other than terephthalic acid and/or an aliphatic dicarboxylic acid having 4 to 20 carbon atoms, and 1 to 200 parts by weight of titanium oxide.

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003年10月16日 (16.10.2003)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 03/085029 A1(51) 国際特許分類: C08G 69/26,  
C08L 77/00, C08K 3/00, G02B 5/08

(21) 国際出願番号: PCT/JP03/04361

(22) 国際出願日: 2003年4月4日 (04.04.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願2002-104063 2002年4月5日 (05.04.2002) JP(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井  
化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP];  
〒100-6070 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号  
Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大内 邦裕  
(OUCHI, Kunihiro) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県袖ヶ浦  
市長浦580-32 三井化学株式会社内 Chiba (JP).(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB,  
BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,  
ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,  
LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO,  
NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL,  
TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU,  
ZA, ZM, ZW.(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ,  
SD, SI, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,  
AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許  
(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,  
GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),  
OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW,  
ML, MR, NE, SN, TD, TG).

規則4.17に規定する申立て:

— USのための発明者である旨の申立て (規則  
4.17(iv))

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: RESIN COMPOSITION FOR LIGHT EMITTING DIODE REFLECTORS

(54) 発明の名称: 発光ダイオード反射板用樹脂組成物

(57) Abstract: A resin composition useful in the production of light-emitting diode reflectors is provided, which can suppress delamination or bubbling in epoxy bonding or epoxy sealing even when preliminary drying such as heating is not carried out. The resin composition is characterized by comprising 100 parts by weight of a polyamide resin and 1 to 200 parts by weight of an inorganic filler (B), the polyamide resin being one comprising diamine units consisting of 50 to 100 mole % of 1,9-diaminononane and 0 to 50 mole % of a linear aliphatic diamine having 6 to 12 carbon atoms and/or an aliphatic diamine having a C<sub>6-12</sub> side chain and dicarboxylic acid units consisting of 60 to 100 mole % of terephthalic acid and 0 to 40 mole % of an aromatic dicarboxylic acid except terephthalic acid and/or an aliphatic dicarboxylic acid having 4 to 20 carbon atoms.

(57) 要約: 加熱操作等の予備的乾燥操作をしなくても、エポキシ接着やエポキシ封止の際の剥離や気泡が発生を抑制できる発光ダイオード反射板に用いられる樹脂組成物を提供する。ポリアミドとしては、1,9-ジアミノノナン50~100モル%と、炭素数6~12の直鎖脂肪族ジアミン、及び/又は、炭素数6~12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0~50モル%からなるジアミン成分単位と、テレフタル酸60~100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸、及び/又は、炭素原子数4~20の脂肪族ジカルボン酸0~40モル%からなるジカルボン酸成分単位を含んでなるポリアミド樹脂を用いる。この樹脂100重量部と、成分(B)として無機充填材1~200重量部とを含んでなることを特徴とする発光ダイオード反射板用樹脂組成物とされる。

WO 03/085029 A1

## 明細書

## 発光ダイオード反射板用樹脂組成物

## 5 技術分野

本発明は、発光ダイオード反射板の成形品材料に好適な、低吸水性、および耐熱性に優れるポリアミド樹脂組成物、およびその成形品に関する。

## 10 背景技術

## 〔技術的背景〕

従来、発光ダイオードは赤色と緑色だけであったが、近年、青色が開  
発されたことによって光の3原色が揃った。これによって、発光ダイ  
15 オードはフルカラー化が可能となり、携帯電話の液晶バックライト、種々  
のディスプレイや照明などの多くの分野で利用されつつある。発光ダイ  
オードには大きく分けて、エポキシ樹脂で成形された砲弾型と樹脂製反  
射板付きの二つがある。後者の発光ダイオードは樹脂から成形された反  
射板に発光ダイオードを設置した後、エポキシで封止して製造される。  
20 この発光ダイオード反射板を成形する樹脂には、高い光線反射率、高い  
耐光性、エポキシ封止材との高い密着性、エポキシ封止工程の硬化温度  
で変色しにくい耐熱性などの性能が求められる。

例えば、この分野では、LCP（液晶ポリマー）や耐熱ポリアミドが  
使用されてきた。LCPは耐熱性と耐光性に優れているが、エポキシ封  
25 止材との密着性が非常に悪いという欠点を有している。また、従来の技  
術による耐熱ポリアミドは、エポキシ封止材との密着性は良好であるが、  
エポキシ封止材硬化時に、エポキシ封止材の剥離や気泡を発生する等の  
問題があった。

この問題の対策として、いわゆる当業者は、経験的に、耐熱性ポリア

ミドを、各工程で、加工前にベーキング（加熱処理）をしてきた。

〔従来の技術における問題点〕

本発明者らは、従来の技術による耐熱ポリアミドは、加工前にベーキング（加熱処理）をしないと、エポキシ封止材硬化時に、エポキシ封止材の剥離や気泡を発生するという現象に着目し、耐熱性ポリアミドは吸水性であるために、耐熱性ポリアミドが自然に孕んでいた水分が原因となり、エポキシ封止材硬化時に、エポキシ封止材の剥離や気泡を発生するのであろうとの作業仮説を立て、鋭意検討を進めた。その結果、本出願明細書の〔実施例〕の欄において後述する『吸水率』を評価の尺度として採用すると、従来の技術による耐熱ポリアミドの吸水率は、概ね、3.9%以上であった。そして、本発明者らは、耐熱性ポリアミドについて、0～3.9%の水分率の領域において、エポキシ封止材硬化時に、エポキシ封止材の剥離や気泡を発生させない水分率の臨界値（閾値）を求めたところ、吸水率3.5%以下、好ましくは3.0%以下、より好ましくは2.5%以下、さらに好ましくは2.0%以下では、エポキシ封止材の剥離や気泡が発生しないという知見を得た。本発明者らは、この知見に基づき、吸水率3.5%以下の耐熱性ポリアミド、好ましくは3.0%以下の耐熱性ポリアミド、より好ましくは2.5%以下の耐熱性ポリアミド、さらに好ましくは2.0%以下の耐熱性ポリアミドを、発光ダイオード反射板に応用すれば、従来の技術では必要であった加熱操作等の予備的乾燥操作を行なわなくても、エポキシ接着やエポキシ封止の際に、剥離や気泡が発生しないであろうと着想した。

すなわち、本発明者らは、本発明者らが得た知見に基づき、従来の技術による耐熱性ポリアミドでは、予め耐熱性ポリアミドが自然に孕んでいた水分を除去する操作（加熱操作等の予備的乾燥操作）をしないと、エポキシ接着やエポキシ封止の際に、剥離や気泡が発生するという、従来の技術の問題点に鑑み、予備的乾燥操作が不要な耐熱ポリアミドを発光ダイオード反射板に応用すれば、従来の技術では必要であった加熱操作等の予備的乾燥操作を行なわなくても、エポキシ接着やエポキシ封止

の際に、剥離や気泡が発生しないであろうと着想した。

[発明が解決しようとする課題]

5 本発明が解決しようとする課題の一つは、本発明者らが得た知見に基づき、従来の技術による耐熱性ポリアミドでは、予め耐熱性ポリアミドが自然に孕んでいた水分を除去する操作（加熱操作等の予備的乾燥操作）をしないと、エポキシ接着やエポキシ封止の際に、剥離や気泡が発生するという、従来の技術の問題点に鑑み、予備的乾燥操作が不要な発光ダイオード反射板用耐熱ポリアミドを提供することである。

10 本発明が解決しようとする課題の一つは、製造の際に、特段の加熱操作等の予備的乾燥操作を行なわなくても、エポキシ接着やエポキシ封止の際に、剥離や気泡が発生しないことを特徴とする、この樹脂組成物を含んで構成される発光ダイオード反射板を提供することである。

すなわち、本発明が解決しようとする課題は、上記のような従来の技術  
15 における問題点を解決しようとするものであって、発光ダイオード反射板の成形品材料に好適な、低吸水性及び耐熱性に優れるポリアミド樹脂組成物、この樹脂を含んで構成される発光ダイオード反射板、並びに、この樹脂を成形してなる発光ダイオード反射板を提供することを目的としている。

20

### 発明の開示

本発明者は、上記問題点を克服するために、ポリアミド樹脂を構成する成分についてさらに詳しく検討した結果、低吸水性を有し、さらに耐熱  
25 性に優れる樹脂を見出した。

本発明は、1, 9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミン、および/または、炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外

の芳香族ジカルボン酸、および／または、炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミドを含んでなることを特徴とする、発光ダイオード反射板に用いられるポリアミド樹脂を提供する。

- 5 本発明の発光ダイオード反射板用ポリアミド樹脂組成物は、成分(A)として、1, 9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミン、および／または、炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸、および／または、炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミド100重量部と、成分(B)として、無機充填材1～200重量部とを含むことが好ましい。

- 15 本発明の成分(B)の無機充填材は、ガラス繊維、タルク、ウォラストナイト、チタン酸カリウム、酸化亜鉛、二酸化チタン、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、及び、培焼カオリンクレイからなる群から選択される少なくとも一つの無機充填材を含むことは本発明の好ましい態様の1つである。

- 20 本発明は、上記記載のポリアミド樹脂を含んで構成される発光ダイオード反射板を提供する。

本発明は、上記記載のポリアミド樹脂組成物を含んで構成される発光ダイオード反射板を提供する。

- 25 本発明は、1, 9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミン、および／または、炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸、および／または、炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミドを含んでなることを特徴とする、エポキシ

樹脂接合用成形加工品用樹脂組成物を提供する。

本発明のエポキシ樹脂接合用成形加工品用樹脂組成物は、成分（A）として、1，9－ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミン、および／または、炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位（a－1）と、テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸、および／または、炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位（a－2）を分子内に有するポリアミド100重量部と、成分（B）として、無機充填材1～200重量部とを含むことが好ましい。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係るポリアミド樹脂、ポリアミド樹脂組成物、その成形品、発光ダイオード反射板について具体的に説明する。

##### 〔発光ダイオード反射板〕

本出願明細書において使用する『発光ダイオード反射板』なる語には、『板』なる漢字を使用してはいるが、この語の概念は、『板』状の形状を有するもののみに限定されず、少なくとも光を放射する方向の面が解放された、又は、解放されていないケーシングやハウジング一般を包含し、より具体的には、箱状又は函状の形状を有するもの、漏斗状の形状を有するもの、お椀状の形状を有するもの、パラボナ状の形状を有するもの、円柱状の形状を有するもの、円錐状の形状を有するもの、ハニカム状の形状を有するもの等、板（平面、球面、曲面等の面）を光を反射する面として有する三次元形状一般をも包含する。本発明において発光ダイオード反射板は、通常、ポリアミド樹脂、又は、ポリアミド樹脂と無機充填材とを含んでなる樹脂組成物を、射出成形、溶融成形、押出成形、インフレーション成形、ブロー成形等の加熱成形により、所望の形状に賦形される。本発明において発光ダイオード反射板は、通常、発光ダイオ



ード素子その他の部品と、エポキシ樹脂により、封止、接合、接着等が行なわれる。

[ポリアミド樹脂]

ポリアミド樹脂としては、下記のポリアミド樹脂（成分（A））が使用  
5 される。ポリアミド樹脂（成分（A））は、ジアミン由来構成単位（a-1）とジカルボン酸由来構成単位（a-2）とから重合される。ポリアミド樹脂（成分（A））は、[実施例]の欄において後述する『吸水率』を評価の尺度として採用すると、吸水率3.5%以下の耐熱性ポリアミド樹脂、好ましくは3.0%以下の耐熱性ポリアミド樹脂、より好ましくは2.5%以下の耐熱性ポリアミド樹脂、さらに好ましくは2.0%  
10 以下のポリアミド樹脂である。ポリアミド樹脂（成分（A））は、[実施例]の欄において後述する『吸水率』を評価の尺度として採用すると、一般的には、吸水率1.5~3.5%の耐熱性ポリアミド樹脂、好ましくは1.5~3.0%の耐熱性ポリアミド樹脂、より好ましくは1.5~2.5%の耐熱性ポリアミド樹脂、さらに好ましくは1.5~2.0%  
15 以下のポリアミド樹脂である。

[ジアミン由来構成単位（a-1）]

本発明で使用するポリアミド樹脂（成分（A））を構成するジアミン由来構成単位（a-1）は、1,9-ジアミノノナンと、直鎖および／または側鎖を有する炭素数6~12の脂肪族ジアミンから誘導され、1,  
20 9-ジアミノノナンを50~100モル%、直鎖および／または側鎖を有する炭素数6~12の脂肪族ジアミンを0~50モル%含有するジアミン由来構成単位から合成することが好ましい。

[直鎖脂肪族ジアミン成分]

25 ジアミン由来構成単位（a-1）を、1,9-ジアミノノナンと共に構成する直鎖脂肪族ジアミン成分の具体的な例としては、1,6-ジアミノヘキサン、1,7-ジアミノヘプタン、1,8-ジアミノオクタン、1,9-ジアミノノナン、1,10-ジアミノデカン、1,11-ジアミノウンデカン、および1,12-ジアミドデカンを挙げることができ

る。これらの中でも、1, 6-ジアミノヘキサンが特に好ましい。

[側鎖を有する脂肪族ジアミン成分]

ジアミン由来構成単位 (a-1) を、1, 9-ジアミノノナンと共に構成する側鎖を有する炭素原子数 6 ~ 12 の脂肪族ジアミン成分は、側鎖アルキル基を有する脂肪族ジアミンであれば特に制限はないが、具体的例としては、2-メチル-1, 5-ジアミノペンタン、2-メチル-1, 6-ジアミノヘキサン、2-メチル-1, 7-ジアミノヘプタン、2-メチル-1, 8-ジアミノオクタン、2-メチル-1, 9-ジアミノノナン、2-メチル-1, 10-ジアミノデカン、2-メチル-1, 11-ジアミノウンデカン等が挙げられる。これらの中では、2-メチル-1, 7-ジアミノヘプタン、2-メチル-1, 8-ジアミノオクタン、2-メチル-1, 9-ジアミノノナンから誘導される由来構成単位が好ましく、特に、2-メチル-1, 8-ジアミノオクタンが好ましい。

1, 9-ジアミノノナンと共に構成する上記ジアミン成分は、直鎖脂肪族ジアミン成分と側鎖アルキル基を有する脂肪族ジアミン成分を任意の割合で混合して使用する事ができるが、直鎖脂肪族ジアミン成分、もしくは側鎖アルキル基を有する脂肪族ジアミン成分を単独で使うことが好ましい。

[ジカルボン酸由来構成単位 (a-2)]

本発明で使用するポリアミド樹脂 (成分 (A)) を構成するジカルボン酸由来構成単位 (a-2) は、テレフタル酸由来構成単位 60 ~ 100 モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸由来構成単位 0 ~ 40 モル%、および/または炭素原子数 4 ~ 20 の脂肪族ジカルボン酸由来構成単位 0 ~ 40 モル%から重合されることが好ましい。このうちテレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸由来構成単位としては、例えばイソフタル酸、2-メチルテレフタル酸、ナフタレンジカルボン酸およびこれらの組み合わせなどが挙げられる。

[脂肪族ジカルボン酸成分]

また、脂肪族ジカルボン酸由来構成単位は、その炭素数を特に制限す

るものではないが、好ましくは4～20、さらに好ましくは6～12の脂肪族ジカルボン酸から誘導される。このような脂肪族ジカルボン酸由来構成単位を誘導するために用いられる脂肪族ジカルボン酸の例としては、例えば、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸、ウンデカンジカルボン酸およびドデカンジカルボン酸等が挙げられる。これらの中でも、アジピン酸が特に好ましい。

[テレフタル酸成分／テレフタル酸以外のジカルボン酸成分比]

本発明においては、ジカルボン酸由来構成単位を100モル%とするとき、テレフタル酸由来構成単位から誘導される構成単位は、60～100モル%、好ましくは80～100モル%の量で含有され、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸由来構成単位から誘導される構成単位は0～40モル%、好ましくは0～20モル%の量で含有され、および／または炭素原子数4～20、好ましくは4～12の脂肪族ジカルボン酸由来構成単位から誘導される構成単位が0～40モル%、好ましくは0～20モル%の量で含有することが好ましい。また、本発明においては、ジカルボン酸由来構成単位(a-2)として、上記のようなテレフタル酸由来構成単位および脂肪族ジカルボン酸由来構成単位と共に、少量、例えば、10モル%以下程度の量の多価カルボン酸由来構成単位が含まれていてもよい。このような多価カルボン酸由来構成単位として具体的には、トリメリット酸およびピロメリット酸等のような三塩基酸および多塩基酸を挙げることができる。

[ポリアミド樹脂(成分(A))の製造方法]

本発明で使用するポリアミド樹脂(成分(A))を製造するためには、上記のようなジアミン由来構成単位(a-1)とジカルボン酸由来構成単位(a-2)とを加えて、触媒の存在下に加熱する事により製造することができる。また、この反応において、ジアミン由来構成単位(a-1)の全モル数が、ジカルボン酸由来構成単位(a-2)の全モル数より多く配合されることが好ましく、特に好ましくは全ジカルボン酸由来構成単位を100モル%とした時、全ジアミン由来構成単位が100～

- 120モル%である。この反応は、通常は不活性ガス雰囲気下で行なわれ、一般には反応容器内を窒素ガスなどの不活性ガスで置換する。また、ポリアミドの重縮合反応を制御するために、水を予め封入しておくことが望ましく、水に可溶な有機溶媒、例えばメタノール、エタノールなどのアルコール類が含有されていてもよい。

#### [触媒]

- 本発明で使用するポリアミド樹脂（成分（A））を製造するために使用することができる触媒としては、リン酸、その塩およびリン酸エステル化合物；亜リン酸、その塩およびエステル化合物；並びに、次亜リン酸、その塩およびエステル化合物を使用することができる。これらの中でも、リン酸ナトリウム、亜リン酸ナトリウム、次亜リン酸カリウム、次亜リン酸ナトリウム等が好ましい。これらのリン酸化合物は、単独であるいは組み合わせて使用することができる。このようなリン系化合物は、上記のようなジカルボン酸に対して、通常は0.001～5モル%、好ましくは0.002～2モル%の割合で用いられる。

#### [末端封止剤]

- 本発明で使用するポリアミド樹脂（成分（A））を製造するためには、末端封止剤を使用することが好ましい。この末端封止剤としては、安息香酸、安息香酸のアルカリ金属塩、酢酸等を使用することができる。このような末端封止剤は、ジカルボン酸1モルに対して、通常は0.001～5モル、好ましくは0.01～2モルの量で使用される。この末端封止剤の使用量を調整することにより、得られる重縮合物の極限粘度 $[\eta]$ を制御することができる。

#### [ポリアミド低次縮合物を製造するための反応条件]

- このような重縮合物を調製する際の反応条件は、具体的には、反応温度は通常200～290℃、好ましくは220～280℃、反応時間は通常0.5～5時間、好ましくは1～3時間である。さらにこの反応は常圧から加圧のいずれの条件で行うことができるが、加圧条件で反応を行うことが好ましく、反応圧は、通常20～60 kg/cm<sup>2</sup>、好ましくは2

5 ～ 50 [kg] / cm<sup>2</sup> の範囲内に設定される。そして、このようにして重縮合反応を行うことにより、30℃の濃硫酸中で測定した極限粘度 $[\eta]$ が、通常は0.05～0.6 dl/g、好ましくは0.08～0.3 dl/gの範囲内にある低次縮合物を得ることができる。こうして水性媒体中に生成したポリアミド低次縮合物は、反応液と分離される。このポリアミド低次縮合物と反応液との分離には、例えば濾過、遠心分離等の方法を採用することもできるが、生成した半芳香族ポリアミド低次縮合物を含有する反応液を、ノズルを介して大気中にフラッシュすることにより、固液分離する方法が効率的である。

#### 10 [後重合]

本発明では上記のようにして得られたポリアミド低次縮合物を用いて後重合を行う。この後重合は、上記ポリアミド低次縮合物を乾燥した後に加熱して、熔融状態にし、この熔融物に剪断応力を付与しながら行なうことが好ましい。この反応に際しては、乾燥ポリアミド低次縮合物が少なくとも熔融する温度に加熱する。一般には、乾燥ポリアミド低次縮合物の融点以上の温度、好ましくはこの融点よりも10～60℃高い温度に加熱される。剪断応力は、例えばベント付き二軸押出機、ニーダー等を用いることにより熔融物に付与することができる。こうして熔融物に剪断応力を付与することにより、熔融状態にある乾燥ポリアミド低次縮合物が相互に重縮合すると共に、縮合物の重縮合反応も進行するものと考えられる。

#### [固相重合・熔融重合等]

本発明で使用するポリアミド樹脂（成分（A））の製造に関する他の方法として、上記ポリアミド低次縮合物を一般公知の方法にて固相重合させて、極限粘度 $[\eta]$ が0.5～2.0 [dl/g]の範囲のポリアミドを調製することができる。本発明で使用するポリアミド樹脂（成分（A））の製造に関する、さらに他の方法として、上記ポリアミド低次縮合物を一般公知の方法にて固相重合させて、極限粘度 $[\eta]$ が0.5～1.5 [dl/g]の範囲のポリアミド前駆体を調製し、さらにこの前駆体

を熔融重合させて、極限粘度 $[\eta]$ が $0.8 \sim 3.0$  [dl/g]の範囲にすることができる。また、本発明で使用するポリアミド樹脂(成分(A))は、このポリアミドの融点以上、分解温度未満に加熱して、通常の成形装置を使用して所望の形状に成形することができる。特に、射出成形によって、発光ダイオード反射板を効率よく成形することができる。

〔ポリアミド樹脂(成分(A))の特性〕

上記組成の範囲にあるポリアミド樹脂(成分(A))によって、優れた成形性、低吸水性、および耐熱性を有することができる。本発明で用いられるポリアミド樹脂は、 $25^{\circ}\text{C}$ の96.5%硫酸中で測定した極限粘度が、 $0.5 \sim 3.0$  [dl/g]、好ましくは $0.5 \sim 2.5$  [dl/g]、特に $0.6 \sim 2.0$  [dl/g]であることが好ましい。このような範囲にある場合、成形性や成形品の強度特性等に優れる。また、本発明で使用されるポリアミド樹脂(成分(A))は、DSCで測定した融点が $260^{\circ}\text{C}$ 以上、 $330^{\circ}\text{C}$ 未満、特に $270^{\circ}\text{C} \sim 320^{\circ}\text{C}$ の範囲内にあることが好ましい。このような範囲にあるポリアミド樹脂では、特に優れた耐熱性を有する。融点測定は、DSC(示差走査熱量計)を用いて、一旦、 $330^{\circ}\text{C}$ で5分間保持し、次いで $10$  [ $^{\circ}\text{C}/\text{分}$ ]の速度で $23^{\circ}\text{C}$ まで降温せしめた後、 $10$  [ $^{\circ}\text{C}/\text{分}$ ]で昇温して行なった。このときの融解に基づく吸熱ピークを融点( $T_m$ )とした。

〔無機充填材〕

無機充填材(無機充填剤)としては、下記の無機充填材が好ましく使用される。本発明では、発明の効果を損なわない範囲で、以下の充填剤をポリアミド樹脂(成分(A))100重量部に対し、1~200重量部の割合で添加する。繊維状の充填材(特にガラス繊維、アラミド繊維、炭素繊維等)、粉末状、粒状、板状、針状の充填材(特にシリカ、アルミナ、炭酸カルシウム、二酸化チタン、タルク、ウォラストナイト、ケイソウ土、培焼カオリンクレイ、クレイ、カオリン、球状ガラス、マイカ、酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、酸化亜鉛、チタン酸カリウム、ウイスカ等)、この中では、特に、ガラス繊維、タルク、ウ

オラストナイト、チタン酸カリウム、酸化亜鉛、酸化チタン、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、培焼カオリンクレイが好ましく、これらから選ばれる少なくとも1種類又は2種類以上の無機充填材を含む。

[添加剤] また、本発明では、発明の効果を損なわない範囲で、用途に  
5 応じて、以下の添加剤、すなわち、酸化防止剤（ヒンダードフェノール類）、耐熱安定剤（リン化合物、ラクトン化合物、ビタミンE類、イオウ化合物、ハイドロキノン類、ハロゲン化銅、ヨウ素化合物等）、耐光安定剤（ベンゾトリアゾール類、トリアジン類、ベンゾフェノン類、ベンゾエート類、ヒンダードアミン類）、他の重合体（オレフィン類、変性ポリ  
10 オレフィン類、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・1-ブテン共重合体、プロピレン・エチレン共重合体、プロピレン・1-ブテン共重合体等のオレフィン共重合体、ポリスチレン、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、  
15 弗素樹脂、シリコーン樹脂、LCP等）、蛍光増白剤、可塑剤、増粘剤、帯電防止剤、離型剤、顔料、染料、核剤、種々公知の配合剤を添加することができる。

#### [ポリアミド樹脂組成物（成分（A））の調製方法]

本発明で使用するポリアミド樹脂組成物（成分（A））を調製するには、各成分を、種々公知の方法、例えばヘンシェルミキサー、V-ブレンダー、  
20 リボンブレンダー、タンブラーブレンダー等で混合する方法、あるいは混合後、一軸押出機、多軸押出機、ニーダー、バンバリーミキサー等で熔融混練後、造粒あるいは粉碎する方法を採用すればよい。本発明に係るポリアミド組成物は、上記ポリアミド（A）を熔融状態、例えば、280～360℃に加熱・維持しながら、成分（B）として、無機充填材、  
25 必要により上記繊維状充填剤、粉末状充填剤、各種添加剤を配合して混練するなどの方法により調製することができる。この際、押出し機、ニーダー等の通常の混練装置を用いることができる。例えば上記のようにして調製されたポリアミド樹脂（成分（A））組成物は、粉末、ペレット状その他の形状にして、圧縮成形法、射出成形法、押出し成形法などを

利用することにより、各種成形品にすることができる。

### 実施例

- 5 次に、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明はその要を超えないかぎりこれらの例に何ら制限されるものではない。なお、実施例および比較例に記した分析および測定は以下の方法に従って測定した。

①極限粘度 $[\eta]$ : ポリアミド樹脂 0.5 [g] を 96.5% 硫酸溶液 50  
10 [ml] に溶解し、ウペローデ粘度計を使用し、 $25.0 \pm 0.05^\circ\text{C}$  の条件下で試料溶液の流下秒数を測定し、以下の式に基づき算出した。 $[\eta] = \eta_{SP} / [C(1 + 0.205 \eta_{SP})]$   $\eta_{SP} = (t - t_0) / t_0$   $[\eta]$ : 極限粘度 [dl/g]  $\eta_{SP}$ : 比粘度  $C$ : 試料濃度 [g/dl]  $t$ : 試料溶液の流下秒数 [秒]  $t_0$ : ブランク硫酸の流下秒数 [秒]

15 ②融点 ( $T_m$ ): PerkinElmer 社製 DSC 7 型を用いて、一旦  $330^\circ\text{C}$  で 5 分間保持し、次いで  $10 [^\circ\text{C}/\text{分}]$  の速度で  $23^\circ\text{C}$  まで降温せしめた後、 $10 [^\circ\text{C}/\text{分}]$  で昇温して行なった。このときの融解に基づく吸熱ピークを融点とした。

③吸水率: ポリアミド樹脂組成物を、射出圧力  $1000 [\text{kg}/\text{cm}^2]$ 、  
20 シリンダー温度を樹脂の融点より  $10^\circ\text{C}$  高い温度に設定し、金型温度  $120 [^\circ\text{C}]$  にて射出成形し、長さ  $64 [\text{mm}]$ 、幅  $6 [\text{mm}]$ 、厚さ  $0.8 [\text{mm}]$  の試験片を得た。この試験片を  $40 [^\circ\text{C}]$ 、相対湿度  $95\%$  の恒温恒湿室に保管して吸水させた。96 時間吸水させた後、試験片重量を精密天秤で測定した。吸水率(重量%) は、次の式で求めた。 $M = (M_2 - M_1) / M_1 \times 100$   $M$ : 吸水率 (重量%)  $M_1$ : 試験片の絶乾重量(g)  $M_2$ : 吸水後の試験片重量(g)

#### [実施例 1]

テレフタル酸  $46.5 [\text{kg}]$  (280 モル)、1, 9-ジアミノノナンを  $44.7 [\text{kg}]$  (283 モル)、安息香酸  $0.43 [\text{kg}]$  (3.5 モル)、



表

	実施例					比較例
	1	2	3	4	5	1
ジアミン中のNMDA純度(モル%)	100	100	90	90	50	HMDA 100
他のジアミンの種類 および純度(モル%)	なし	なし	MODA 10	MODA 10	MODA 50	なし
ジカルボン酸(モル比) TA AA	100 0	85 15	100 0	85 15	100 0	55 45
$[\eta]$ (dl/g)	0.9	1	1	1.1	1	1.1
Tm(°C)	317	310	312	300	270	310
吸水率(重量%)	1.6	1.8	1.8	1.9	3.2	3.9

NMDA : 1, 9-ジ<sup>\*</sup>アミノノナン、MODA : 2-メチル-1, 8-ジ<sup>\*</sup>アミノオクタン、HMDA : 1, 6-ジ<sup>\*</sup>アミノヘキサン

TA : テレフタル酸、AA : アジピン酸

5

次亜リン酸ナトリウム水和物 0.06 [kg] (0.6 モル) および蒸留水 27.4 [kg] をオートクレーブに入れ、反応釜内部を十分に窒素置換した。攪拌しながら内部温度を4時間かけて250℃に昇温した。そのまま1時間反応を続け、ポリアミド低次縮合物を得た。このポリアミド低次縮合物を真空下190℃で、12時間固相重合した。その後、スクリー径37 [mm]、L/D=36の二軸押出機にて、ポリアミドの融点より30℃高いバレル設定温度でスクリー回転数300 [rpm]、10 [kg/h] の樹脂供給速度で熔融重合して、ポリアミド樹脂を得た。このポリアミド樹脂の $[\eta]$ 、融点(Tm)を表に示す。当該ポリアミド樹脂70重量部に対し、ガラス繊維20重量部、酸化チタン10重量部、タルク1重量部を加え、二軸押出機にてポリアミド樹脂の融点より10～30℃高い温度にて熔融混練してポリアミド樹脂組成物を得た。このポリアミド樹脂組成物を射出成形し、吸水率を測定した。その結果を表に示す。

20 [実施例2～5]

表に示すジアミン由来構成単位、およびジカルボン酸成分のモル比に

て、実施例 1 と同様にポリアミド樹脂を得た。また、実施例 1 と同様にポリアミド樹脂組成物を得た。これらを実施例 1 と同様に評価し、その結果を表に示す。

5 [比較例 1] 実施例 1 において、ジアミンの種類を 1, 6-ジアミノヘキサンにした以外は、表に示すジアミン由来構成単位、およびジカルボン酸成分のモル比にて、実施例 1 と同様の方法にてポリアミド樹脂、およびポリアミド樹脂組成物を得た。これらを実施例 1 と同様に評価した結果、吸水率が高い。

10

### 産業上の利用可能性

本発明の効果の一つは、本発明者らが得た知見に基づき、従来の技術による耐熱性ポリアミドでは、予め耐熱性ポリアミドが自然に孕んでいた水分を除去する操作（加熱操作等の予備的乾燥操作）をしないと、エ  
15 ポキシ接着やエポキシ封止の際に、剥離や気泡が発生するという、従来の技術の問題点に鑑み、予備的乾燥操作が不要な発光ダイオード反射板用耐熱ポリアミドを提供することができることである。本発明の効果の一つは、製造の際に、特段の加熱操作等の予備的乾燥操作を行なわなくても、エポキシ接着やエポキシ封止の際に、剥離や気泡が発生しないこ  
20 とを特徴とする、この樹脂組成物を含んで構成される発光ダイオード反射板を提供することができることである。すなわち、本発明の効果は、従来の技術における問題点を解決しようとするものであって、発光ダイオード反射板の成形品材料に好適な、低吸水性及び耐熱性に優れるポリアミド樹脂組成物、この樹脂を含んで構成される発光ダイオード反射板、  
25 並びに、この樹脂を成形してなる発光ダイオード反射板を提供することができることである。

## 請求の範囲

1. 1, 9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミンおよび/または炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、  
5 テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸および/または炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミド(A)を含んでなることを特徴とする発光ダイオード反射板用樹脂。
- 10 2. 成分(A)として、1, 9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミンおよび/または炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸および/または炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミド100重量部と、成分(B)として無機充填材1～200重量部とを含んでなることを特徴とする、発光ダイオード反射板用樹脂組成物。
- 15 3. 成分(B)の無機充填材が、ガラス繊維、タルク、ウォラストナイト、チタン酸カリウム、酸化亜鉛、二酸化チタン、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、及び、培焼カオリンクレイからなる群から選択される少なくとも一つの無機充填材を含んでなるものであることを特徴とする請求項2に記載した発光ダイオード反射板用樹脂組成物。
- 20 4. 請求項1に記載した樹脂を含んで構成される発光ダイオード反射板。
- 25 5. 請求項2又は3に記載した樹脂組成物を用いて構成される発光ダイオード反射板。
6. 1, 9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12

の直鎖脂肪族ジアミンおよび／または炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、テレフタル酸60～100モル%とテレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸および／または炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミドを含んでなることを特徴とする、エポキシ樹脂接合用成形加工品用樹脂組成物。

7. 成分(A)として、1,9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミンおよび／または炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸および／または炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミド(A)100重量部と、成分(B)として無機充填材1～200重量部とを含んでなることを特徴とする、エポキシ樹脂接合用成形加工品用樹脂組成物。

8. 1,9-ジアミノノナン50～100モル%と、炭素数6～12の直鎖脂肪族ジアミン、および／または、炭素数6～12の側鎖を有する脂肪族ジアミン0～50モル%由来のジアミン由来構成単位(a-1)と、テレフタル酸60～100モル%と、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸、および／または、炭素原子数4～20の脂肪族ジカルボン酸0～40モル%由来のジカルボン酸由来構成単位(a-2)を分子内に有するポリアミド(A)100重量部と、酸化チタン1～200重量部を含んでなることを特徴とする発光ダイオード反射板用樹脂組成物。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/04361

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08G69/26, C08L77/00, C08K3/00, G02B5/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08G69/26, C08L77/00-77/06, C08K3/00, G02B5/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	JP 2002-294070 A (Otsuka Chemical Co., Ltd.), 09 October, 2002 (09.10.02), Claims; Par. Nos. [0001], [0021] (Family: none)	1-8
X	JP 8-81627 A (Kuraray Co., Ltd.), 26 March, 1996 (26.03.96), Claims; Par. Nos. [0001], [0020] (Family: none)	1-8
X	JP 2001-335708 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 04 December, 2001 (04.12.01), Claims; Par. Nos. [0002], [0004] to [0005], [0048] (Family: none)	1-3, 6-8



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

05 June, 2003 (05.06.03)

Date of mailing of the international search report

17 June, 2003 (17.06.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08G69/26、C08L77/00、C08K3/00、G02B5/08

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08G69/26、C08L77/00-77/06、C08K3/00、G02B5/08

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PA	J P 2002-294070 A (大塚化学株式会社) 2002.10.09, 特許請求の範囲、【0001】段落、【0021】段落 (ファミリーなし)	1-8
X	J P 8-81627 A (株式会社クラレ) 1996.03.26, 特許請求の範囲、【0001】段落、【0020】段落 (ファミリーなし)	1-8

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05.06.03

国際調査報告の発送日

17.06.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

三谷 祥子



4 J

3041

電話番号 03-3581-1101 内線 3455

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2001-335708 A (松下電工株式会社) 200 1. 12. 04, 特許請求の範囲、【0002】段落、【000 4】～【0005】段落、【0048】段落 (ファミリーなし)	1-3, 6-8